

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2002 年 8 月 22 日 (22.08.2002)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 02/065567 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10 (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 羽藤 一仁 (HATOHI, Kazuhito) [JP/JP]; 〒536-0015 大阪府 大阪市 城東区新喜多 1-2-7-2 6 1 0 Osaka (JP). 新倉 順二 (NIKURA, Junji) [JP/JP]; 〒573-0157 大阪府 枚方市 藤阪元町 2-2 7-1 5 Osaka (JP). 神原 輝壽 (KANBARA, Teruhisa) [JP/JP]; 〒560-0056 大阪府 豊中市 宮山町 2-1 9-6 Osaka (JP). 小原 英夫 (OHARA, Hideo) [JP/JP]; 〒576-0016 大阪府 交野市 星田 7-6 7-4 Osaka (JP). 日下部 弘樹 (KUSAKABE, Hiroki) [JP/JP]; 〒590-0113 大阪府 堺市 晴美台 1-2 0-5 Osaka (JP). 長谷 伸啓 (HASE, Nobuhiro) [JP/JP]; 〒572-0055 大阪府 寝屋川市 御幸東町 3-1 4 松風寮 5 4 5 Osaka (JP). 竹口 伸介 (TAKEGUCHI, Shinsuke) [JP/JP]; 〒571-0074 大阪府 門真市 宮前町 1 6-1 松和寮 2 2 6 Osaka (JP). 小林 晋 (KOBAYASHI, Susumu) [JP/JP]; 〒630-0134 奈良県 生駒市 あすか野北 2-1 4-1 9 Nara (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/01275  
(22) 国際出願日: 2002 年 2 月 14 日 (14.02.2002)  
(25) 国際出願の言語: 日本語  
(26) 国際公開の言語: 日本語  
(30) 優先権データ: 特願 2001-39246 2001 年 2 月 15 日 (15.02.2001) JP  
(71) 出願人 (米国についてのみ): 菅生 昌世 (SUGOU, Masayo) (発明者(死亡)の相続人) [JP/JP]; 〒168-0063 東京都 杉並区 和泉 1-5 3-1 4 静山荘 Tokyo (JP).  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府 門真市 大字門真 1 0 0 6 番地 Osaka (JP).  
(74) 代理人: 石井 和郎, 外 (ISHII, Kazuo et al.); 〒541-0041 大阪府 大阪市 中央区北浜 2 丁目 3 番 6 号 北浜山本ビル Osaka (JP).  
(72) 発明者: 山崎 達人 (YAMAZAKI, Tatsuto) (死亡). (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.

[続葉有]

(54) Title: POLYMER ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池

(57) Abstract: A polymer electrolyte type fuel cell which has an electroconductive separator plate comprising a plate formed from a composition containing a binder, electroconductive carbon particles having an average particle diameter which is 50  $\mu$ m or more and not more than 1/3 of the thickness of the thinnest part of the electroconductive separator plate, and at least one type of electroconductive fine carbon particles and electroconductive carbon fibers having a fine diameter. The separator plate does not need machining for forming a gas passage or the like which has been necessary for a conventional one, and thus can be mass-produced with ease by injection molding and accordingly produced at a reduced cost.

(57) 要約:

本発明の高分子電解質型燃料電池は、バインダー、平均粒径が 50  $\mu$ m 以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの 1/3 以下の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる導電性セパレータ板を備える。このセパレータ板は、従来のガス流路等の切削加工が不要で、射出成形により、容易に量産することができ、コストを低減できる。



(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

## 明 細 書

## 高分子電解質型燃料電池

## 技術分野

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネレーションシステム等に使用される高分子電解質を用いた燃料電池に関する。

## 背景技術

高分子電解質膜を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを電気化学的に反応させることにより、電力と熱とを同時に発生させる。この燃料電池は、基本的には、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、および高分子電解質膜の両面に形成された一对の電極、すなわちアノードとカソードから構成される。前記の電極は、通常、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とし、高分子電解質膜の表面に形成される触媒層、およびこの触媒層の外面に形成される、通気性と電子伝導性を併せ持つ拡散層からなる。

電極に供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、二種類のガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスケットが配置される。ガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。これをMEA（電解質膜－電極接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に、場合によっては並列に、接続するための導電性のセパレータ板が配置される。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成

ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路が形成される。ガス流路は、セパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータ板の表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。場合によっては、電極にガス流路溝を形成する方式も提唱されている。

これらの溝に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給するためには、燃料ガスおよび酸化剤ガスをそれぞれ供給する配管を、使用するセパレータ板の枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータ板の溝につなぐ配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のような燃料ガスおよび酸化剤ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した穴を設け、ガス流路の出入り口をこの穴まで通し、この穴から直接燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給するものである。

燃料電池は、運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。通常、1～3セル毎に、冷却水を流す冷却部が設けられる。冷却部をセパレータ板とセパレータ板との間に挿入する形式と、セパレータ板の背面に冷却水流路を設けて冷却部とする形式とがあり、後者が多く利用される。これらのMEAとセパレータ板および冷却部を交互に重ねて10～200セル積層し、その積層体を集電板と絶縁板を介して端板で挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

このような高分子電解質型燃料電池に用いられるセパレータ板は、導電性が高く、かつ燃料ガスに対して気密性が高く、更に水素／酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要がある。このような理由で、従来のセパレータ板は、グラッシーカーボン板や緻密な黒鉛板

で構成し、その表面に切削加工でガス流路を形成したり、ガス流路溝を形成したプレス金型にバインダーと共に膨張黒鉛粉末を入れ、これをプレス加工した後、加熱焼成したりすることにより作製していた。

また、近年、従来より使用されたカーボン材料に代えて、ステンレス鋼などの金属板を用いる試みが行われている。金属板を用いたセパレータ板は、金属板が高温で酸化性の雰囲気曝されるため、長期間使用すると、金属板の腐食や溶解が起こる。金属板が腐食すると、腐食部分の電気抵抗が増大し、電池の出力が低下する。また、金属板が溶解すると、溶解した金属イオンが高分子電解質に拡散し、これが高分子電解質のイオン交換サイトにトラップされ、結果的に高分子電解質自身のイオン伝導性が低下する。このような劣化を避けるため金属板の表面にある程度の厚さを持つ金メッキを施すことが通例であった。さらに、エポキシ樹脂などに金属粉を混ぜた導電性樹脂からなるセパレータ板が検討されている（例えば、特開平6-333580号公報）。

以上のように、セパレータ板をグラッシーカーボン板等の切削で作る方法では、グラッシーカーボン板の材料コストそのものが高いうえに、これを切削するためのコストを引き下げることにも困難である。膨張黒鉛をプレス加工したものは、セパレータ板の導電性を高く保つために、セパレータ板中に占める膨張黒鉛の含有率を80重量%以上に高くする必要がある。そのため材料の力学的強度に問題がある。そして、セパレータ板の厚みバラツキにより電池スタックの締結荷重が偏るなどが原因となって、特に電気自動車の動力源として用いたときは、走行中の振動や衝撃で、セパレータ板に亀裂が入ることがあった。炭素繊維を添加すると強度は向上するが、バインダー樹脂の流れ性が悪くなるため、射出成形が困難となる。また、金メッキを施した金属製セパレータ板は、金メッキのコストに問題がある。導電性樹脂からなるセパレータ板は、グラッ

シーカーボンや金属板に較べて導電性が低く、さらに樹脂の表面が硬いため、電極との接触部分の電気抵抗を下げるためには、強い圧力で締め付ける必要があり、それだけ電池構造が複雑になるという問題がある。

本発明は、導電性炭素粒子を主とする導電材とバインダーからなる導電性セパレータ板を改良して、体積固有抵抗が低く、低コストの導電性セパレータ板を提供することを目的とする。

本発明は、またそのような導電性セパレータ板を製造する方法を提供する。

#### 発明の開示

本発明は、バインダー、導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる導電性セパレータ板を具備する高分子電解質型燃料電池を提供する。

ここに、導電性炭素粒子は、平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの $1/3$ 以下、好ましくは $200\mu\text{m}$ 以下である。

好ましい導電性の炭素微粒子は、平均直径 $30\sim 100\text{nm}$ に粒度分布のピークを有する炭素微粒子である。

好ましい導電性の微細径炭素繊維は、径 $10\sim 30\text{nm}$ 、長さ $1\sim 10\mu\text{m}$ の炭素繊維である。

本発明は、さらに金属フィラーを含む導電性セパレータ板を提供する。

本発明は、上記の組成物からなる成形用ペレットを調製する工程、および前記ペレットを射出成形する工程を有する高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法を提供する。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は本発明の一実施例における燃料電池に用いた M E A の要部の縦断面図である。

図 2 は同実施例の燃料電池に用いたセパレータ板のカソード側の正面図である。

図 3 は同セパレータ板のアノード側の正面図である。

図 4 は同実施例の燃料電池に用いた他のセパレータ板の冷却水側の正面図である。

図 5 は同実施例の燃料電池に用いた M E A のアノード側の正面図である。

図 6 は実施例 1 の燃料電池の出力特性の時間変化を示した図である。

図 7 は実施例 3 の燃料電池の出力電圧の時間変化を示した図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明は、水素イオン伝導性高分子電解質膜、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む一対の電極、および前記電極の一方に燃料ガスを供給排出し、他方に酸化剤ガスを供給排出する手段を含む一対の導電性セパレータ板を具備し、前記導電性セパレータ板が、バインダー、平均粒径が  $50\ \mu\text{m}$  以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの  $1/3$  以下の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる高分子電解質型燃料電池に関する。

本発明に係る導電性セパレータ板は、グラッシーカーボン板や金属板に較べると、電気伝導性は低い。しかし、射出成形による加工が可能なため、従来のセパレータ板の作製に必要であったガス流路等の切削加工が必要なくなり、生産性を向上させることができ、コストを低減できる。

導電性炭素粒子は、導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの

1 / 3 以下にすることにより、成形性が向上するとともに、得られるセパレータ板のガス透過性が低くなる。

本発明の導電性セパレータ板においては、導電性炭素粒子を結合するバインダー中に導電性の炭素微粒子および／または微細径炭素繊維が分散しており、これによりバインダーに導電性が付与される。

導電性炭素粒子は、長径と短径の比（長径／短径）、すなわちアスペクト比が2以上のものが好ましい。好ましい代表的な炭素粒子は、米粒のように細長い形状を有するものである。このような炭素粒子を含む組成物は、セパレータ板を射出成形する際の流れ性が良い。そして、成形されるセパレータ板中における粒子をランダムに配向させることが可能となり、セパレータ板の導電性が向上する。

本発明の好ましい態様において、セパレータ板は、さらに金属フィラーを含んでいる。この金属フィラーは、炭素粒子同士を電氣的に結合する働きをする。これによって、セパレータ板の体積固有抵抗がより低くなる。

好ましい金属フィラーは、前記導電性炭素粒子と同様に、導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの1 / 3 以下、より好ましくは200  $\mu\text{m}$  以下である。金属フィラーは、長径と短径の比が2以上のものが好ましい。

セパレータ板の表面に露出する金属フィラーは、銀のように酸性雰囲気中で腐食するものは、溶解処理などにより除去するのが好ましい。

本発明の好ましい態様において、バインダーは、熱可塑性樹脂からなる。

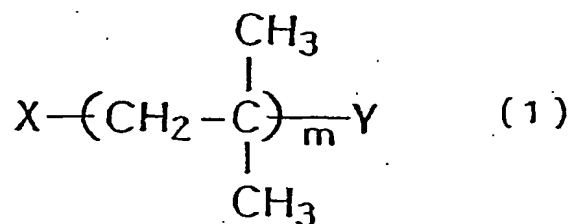
熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレン、メタクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネイト、ポリアミド、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリフェ



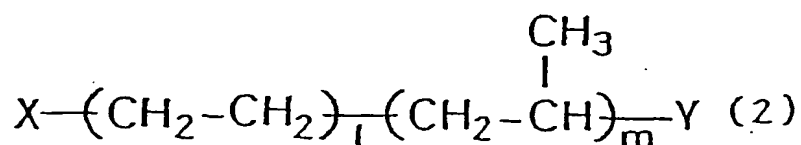
ニレンサルファイド、ポリエーテルケトン、ポリエーテルイミド、フッ素樹脂、エステル樹脂、液晶ポリマー、芳香族ポリエステル、ポリアセタール、ポリフェニレンエーテルなどが挙げられる。

本発明の他の好ましい態様において、バインダーは、気密弾性体からなる。

前記気密弾性体は、式（１）で表されるポリイソブチレンまたは式（２）で表されるエチレンプロピレンランダム共重合体を主鎖骨格とする高分子弾性体からなるのが好ましい。



（式中 X および Y は重合性官能基、m はイソブチレンオリゴマーの繰り返し単位数を表す 1 以上の整数である。）



（式中 X 及び Y は重合性官能基、l 及び m は 1 以上の整数である。）

導電性炭素粒子としては、例えば、天然黒鉛、人造黒鉛、膨張黒鉛、グラッシーカーボンなどが用いられる。導電性の炭素微粒子には、アセチレンブラック、ケッチェンブラック、メソフェーズカーボンなどのカーボンブラックが用いられる。

導電性の微細径炭素繊維としては、カーボンナノチューブが代表的に用いられる。

金属フィラーとしては、例えば、銀、銅、アルミニウム、鉄、ニッケル、鉛、すず、チタン、亜鉛、金、それらの合金などが挙げられる。

本発明のセパレータ板を構成する好ましい組成物は、20～45重量%のバインダー、50～74重量%の導電性炭素粒子、並びに0.5～10重量%の導電性炭素微粒子および／または導電性の微細径炭素繊維からなる。

さらに他の好ましい態様において、前記組成物は、さらに0.5～15重量%の金属フィラーを含む。

本発明の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法は、上記の組成物からなる成形用ペレットを調製する工程、および前記ペレットを射出成形する工程を有する。

ここに用いる成形用金型は、熱伝導率が低く、硬度が高い材料からなるものが好ましい。成形用金型の材料には、成形タクト、および強度の点から、炭素工具鋼（SK材）を用いるのが一般的である。成形材料が金型内に射出されると、成形材料中の熔融バインダーは、その融点以下の温度の金型に接することで速やかに冷却され、硬化する。通常の射出成形用材料は、熱伝導率が低いから、成形タクトを上げるには、急速に冷却することが要求される。そのため金型の保持温度は、金型内への充填性と成形タクトにより決定される。

本発明のセパレータ板を成形するための組成物は、熱伝導率が高いため、金型内へ射出されたとき、温度低下が早く、金型に接している表面部分のバインダーが硬化し、材料の流動が停止し、金型内の隅々までの充填がなされず、成形不良が発生する。従って、金型の材料には熱伝導率の低い材料を適用し、射出された熔融バインダーからの放熱を遅くすることにより、金型に接する部分のバインダーの硬化を遅らせ、金型内への成形材料の充填性を確保する。

本発明のセパレータ板を成形するための組成物は、導電性を上げるために炭素粒子をはじめとして大量の導電性フィラーを含んでいる。このため、金型の摩耗も激しくなる。そこで、ある程度の硬度が要求される。

本発明は、以上に鑑み、低熱伝導率と高硬度の両立する材料を用いる。100℃における熱伝導率が26 W/m/K以下、表面硬度HRCが35以上のものが好ましい。そのような好ましい材料の1つは、ステンレス鋼SUS630である。この他、炭素工具鋼の表面に、アルミナやジルコニアなどの硬度が大きく、熱伝導率の低いセミックを被覆したものをを用いることができる。アルミナを被覆する方法の例は、基材の炭素工具鋼の表面に、あらかじめアルミを蒸着し、500℃で加熱することによりこれを部分的に基材へ拡散させた後、空气中で酸化処理をする。こうして基材と密に結合したアルミナ層を形成することができる。

セパレータ板用材料に、微細径炭素繊維を含んでいる場合、炭素繊維の端部がセパレータ板の表面に突出するように配列されると、ガス拡散電極との電氣的接触が良好となる。そのようなセパレータ板を製造する方法の1つは、成形用金型の内面に、離型剤とともに微細径炭素繊維を付着させておき、これを成形されるセパレータ板の表面に転写する方法である。他の方法は、成形後のセパレータ板の表面部分を熱処理により焼却除去して炭素繊維の端部をセパレータ板表面に露出させる方法である。

次に、バインダーに気密弾性体を用いた本発明の好ましい実施の形態について、より詳しく説明する。

導電性セパレータ板を構成する導電性気密弾性体は、例えば式(1)または(2)で表される高分子からなる弾性体を母剤とし、これに導電性炭素粒子と共にカーボンナノチューブを導電材として混合することにより作製される。このようなセパレータ板は、カーボンナノチューブを

導電材として少量添加することにより、セパレータ板中の導電材の割合を75重量%以下に減らしても十分な導電性が得られる。従って、セパレータ板の剛性が向上し、振動などによるセパレータ板への亀裂の発生を大幅に抑制することができる。

導電性気密弾性体からなるセパレータ板は、表面に柔軟性と弾性を有するため、電池のスタック締結荷重を低減しても、セパレータ板と電極およびセパレータ板同士の接触抵抗を大幅に低減することができる。電池の構成によっては、セパレータ板自身が柔軟性と弾性を有するため、電極の周縁部に配置するガスケットを特に必要とせず、直接セパレータ板の表面でMEAとの間のガスシールを行うことができる。従って、部品点数の削減により、直材比の削減と製造の省プロセス化が可能となる。また、このセパレータ板は、電池のスタック圧が印加されている状態で振動した時、カーボン板のようにひび割れが発生するおそれがない。さらに、導電性気密弾性体の母剤と導電材を選択することにより、金属製セパレータ板で生じる、耐酸性雰囲気での腐食もない。

上記の弾性体には、イオウ成分を有しない加硫剤を添加することもできる。

本発明者らは、以上の要件を具体的に満足する母剤を探索したところ、式(1)で示したポリイソブチレンまたは式(2)で示したエチレンプロピレンランダム共重合体を主鎖骨格とする高分子弾性体が、気密性、耐酸性及び耐熱性に優れセパレータ板用材料として特に適したものであることを見いだした。

式(1)または(2)を主鎖骨格とする高分子弾性体は、その重合度を選択することにより、高分子電解質型燃料電池のセパレータ板に最適な弾性を実現することができる。また、樹脂や高分子弾性体は、その重合前の液状態の時に導電材を混合し、シート状に成形し、これを加熱す

るかまたは電子線を照射することにより、硬化させる。また、シート状に成形する際に、燃料ガスなどの流体を供給する溝を形成することができる。この点でも、従来のカーボン板や金属板に比べ、セパレータ板作製時の加工工程を大幅に簡略化することができる。

前記の式（１）で示されるポリマーは、繰返し数 $m$ のイソブチレンオリゴマーに末端官能基 $X$ と $Y$ を付加したものを１単位として、末端の官能基部分で架橋したものである。 $X$ および $Y$ としてアシル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、イソシアネート基、またはエポキシ基を用いたとき、これらの官能基は多官能基であるので、これらを架橋点とすると、重合後のポリマーはマトリックス状に架橋した網目状構造となる。このポリマーの物性は、式（１）で示した高分子材料中の原料段階でのイソブチレンオリゴマーの繰返し数 $m$ 、最終的な重合度および末端官能基の種類に大きく影響を受ける。

本発明者らの検討の結果、この材料を高分子電解質型燃料電池での導電性セパレータ板材に使用するときには、原料段階でのイソブチレンオリゴマーの繰返し数 $m$ は、 $56 \sim 72$ であり、平均 $64$ であることが望ましく、最終的な重合度は $8000$ 以上であることが望ましい。また、末端官能基 $X$ と $Y$ の含有割合は、安定性、耐酸性の観点から小さいほど好ましい。

前記の式（２）で表されるエチレンプロピレンランダム共重合体の末端官能基 $X$ および $Y$ としては、ジエン基、トリエン基、ジオレフィン基、ポリアルケニルシクロアルカン基、ノボルネン誘導体、アクリロイル基、メタクリロイル基、イソシアネート基、またはエポキシ基などを用い、それぞれに適した重合反応により硬化させることができる。ジエン基、アクリロイル基、またはメタクリロイル基を末端官能基としたときは、電子線照射を用い、またイソシアネート基としたときは、水分によるウ

レタン結合化、エポキシ基のときは、エチルジアミンなどの公知のアミン系硬化剤を用いる加熱により、それぞれ硬化させることができる。そのポリマーの物性は、式（２）の  $l$ 、 $m$  および全体の重合度  $l+m$ 、ならびに末端官能基の影響を受ける。 $l$  は 1000 以下、 $m$  は 19000 以下で、 $l+m$  は 5000～20000 が好ましい。

以上に示した式（１）で示されるポリイソブチレンまたは式（２）で示されるエチレンプロピレンランダム共重合体を主鎖骨格とする、母剤としての高分子弾性体に混合される導電材としては、カーボンナノチューブの他各種の導電性カーボン粉末および繊維が好適に用いられる。これら導電材は、平均粒径  $10 \sim 200 \mu\text{m}$  の炭素粒子を含むことが好ましい。平均粒径  $10 \mu\text{m}$  以上の大きな炭素粒子を含むことにより、炭素粒子同士の接触抵抗を低減できる。また、 $200 \mu\text{m}$  を越える大きな粒子は、成形時に炭素粒子の流動性が悪くなるので好ましくない。最も好ましくは  $50 \sim 100 \mu\text{m}$  の粒子である。前記導電材が混合されて得られる導電性高分子弾性体中の導電材の含有割合は、 $55 \sim 75$  重量％が適当であり、導電材中のカーボンナノチューブの割合は  $2 \sim 50$  重量％が適当である。カーボンナノチューブの割合が  $2$  重量％未満では、カーボンナノチューブ同士の接触が十分でないため導電性向上の効果が小さい。また、カーボンナノチューブは高価であるため  $50$  重量％を越える量を使用するのは不利である。

本発明のセパレータ板を成形するための好ましい組成物は、バインダー、直径  $50 \sim 200 \mu\text{m}$  の導電性炭素粒子、およびカーボンナノチューブからなる。この組成物から調製したペレットないし粒状物を射出成形すると、導電性炭素粒子が高密度に積層され、その周辺にはカーボンナノチューブがランダムに存在している構造となる。通常、セパレータ板の体積固有抵抗は導電性炭素粒子の積層数が多いほど大きくなる傾向

を示す。導電性炭素粒子の平均粒径を大きくすることによって積層数は減らせるが、炭素粒子同士の接触点自体も減少するため、体積固有抵抗を減らすのに大きな効果が得られない。本発明では導電性炭素粒子と導電性炭素粒子との間にカーボンナノチューブが存在するために、炭素粒子相互の接触点が増加し、大幅に体積固有抵抗が低減される。また、このような大きな炭素粒子と短繊維状のカーボンナノチューブを含む組成物を射出成形すると、射出時に炭素粒子とカーボンナノチューブが衝突してカーボンナノチューブの長軸の方向がランダムとなる傾向を示す。このため、炭素繊維の配向によって生じる抵抗値の異方性を解消でき、セパレータ板の面方向および厚み方向の両方において良好な電気伝導性を得ることができる。

以下、本発明の実施の形態を図面を参照しながら説明する。

図1は、MEAの構成を示す要部の縦断面図である。11はカーボンペーパーからなるガス拡散層、12はその片面に形成した触媒層であり、両者を併せて電極13と呼ぶ。この一对の電極により高分子電解質膜14を挟んでMEA15が構成される。

図2は導電性セパレータ板をカソード側から見た正面図であり、図3はその背面図で、アノード側から見た正面図である。この導電性セパレータ板20は、カソード側導電性セパレータ板とアノード側導電性セパレータ板とを兼ねている。セパレータ板20は、一方の端部に、酸化剤ガスの入口側マニホールド穴23a、燃料ガスの入口側マニホールド穴24aおよび冷却水の入口側マニホールド穴25aを有し、他方の端部に、酸化剤ガスの出口側マニホールド穴23b、燃料ガスの出口側マニホールド穴24bおよび冷却水の出口側マニホールド穴25bを有する。セパレータ板20のカソードと対向する面には、マニホールド穴23aから23bに連なる溝26が形成され、この溝内には中央を仕切るリブ

27と複数の平行するガス流路29を形成するためのリブ群28が設けてある。

一方、セパレータ板20のアノードと対向する面には、マニホールド穴24aから24bに連なる溝30が形成され、この溝内には中央を仕切るリブ31と複数の平行するガス流路33を形成するためのリブ群32が設けてある。

ここに示した導電性セパレータ板20は、単電池間に挿入されるものであり、単電池を複数個積層した積層電池の端部に位置するカソード側のセパレータ板は、一方の面には図2のようなガス流路を有するが、他方の面は平面である。また、積層電池の端部に位置するアノード側のセパレータ板は、図3のようなガス流路を有するが、他方の面は平面である。

図4は導電性セパレータ板の冷却水の流路を有する面側の正面図である。この導電性セパレータ板41は、セパレータ板20と同様に、一方の端部に、酸化剤ガスの入口側マニホールド穴43a、燃料ガスの入口側マニホールド穴44aおよび冷却水の入口側マニホールド穴45aを有し、他方の端部に、酸化剤ガスの出口側マニホールド穴43b、燃料ガスの出口側マニホールド穴44bおよび冷却水の出口側マニホールド穴45bを有する。セパレータ板41の一方の表面には、マニホールド穴45aから45bに連なる、冷却水の流路を形成する溝46が形成され、この溝内には複数の円形のリブ47が設けてある。

この導電性セパレータ板41は、その一对を、冷却水の流路46を有する面を対向させて接合し、両者間に冷却水を流す冷却部を構成する。そして、一方のセパレータ板の裏面には、図2と同様に、入口側マニホールド穴43aからマニホールド穴43bに連なる酸化剤ガスの流路を形成し、他方のセパレータ板の裏面には、図3と同様に、入口側マニホ



ールド穴 4 4 a からマニホールド穴 4 4 b に連なる燃料ガスの流路を形成する。

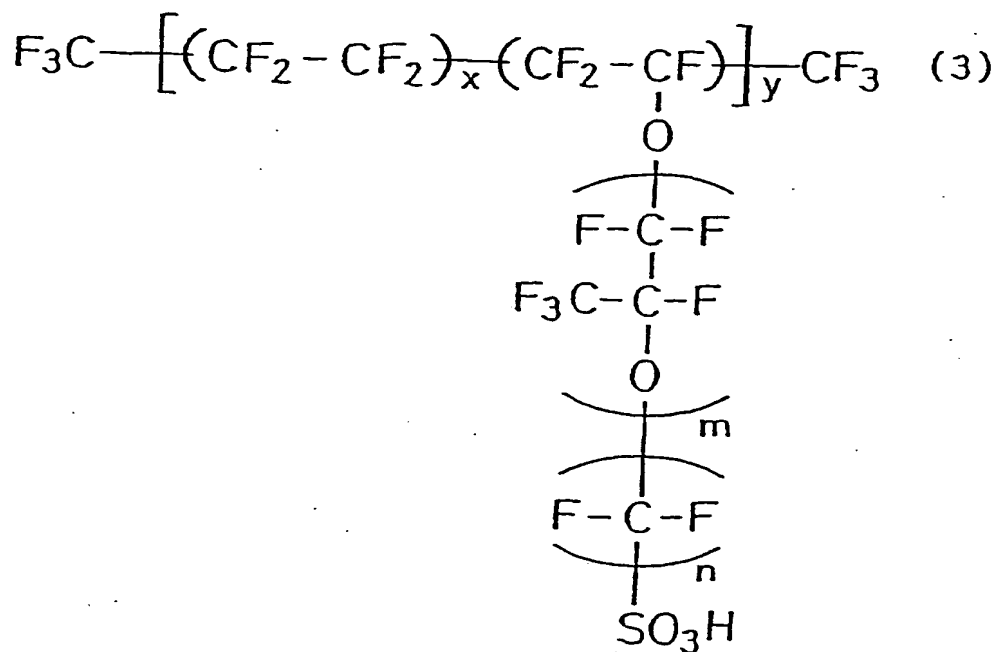
図 5 は M E A の正面図である。M E A 5 0 は、高分子電解質膜 5 1 とこれを挟む電極 5 2 からなり、高分子電解質膜 5 1 には、一方の端部に、酸化剤ガスの入口側マニホールド穴 5 3 a、燃料ガスの入口側マニホールド穴 5 4 a および冷却水の入口側マニホールド穴 5 5 a を有し、他方の端部に、酸化剤ガスの出口側マニホールド穴 5 3 b、燃料ガスの出口側マニホールド穴 5 4 b および冷却水の出口側マニホールド穴 5 5 b を有する。

以下に示す実施例においては、図 5 に示す M E A 5 0 をセパレータ板 2 0 を介して積層し、2 セル毎に上記の冷却部を形成する一対のセパレータ板 4 1 を挿入して 5 0 セルを積層した。

以下、本発明の実施例を図面を参照しながら説明する。

#### 実施例 1

まず、カーボンブラック粉末に、平均粒径約 3 0 Å の白金粒子を重量比 5 0 : 5 0 の割合で担持させて電極触媒を調製した。この触媒粉末のイソプロパノール分散液に、式 ( 3 ) で表されるパーフルオロカーボンスルホン酸をエチルアルコールに分散した液を混合し、触媒ペーストを作製した。



(式中  $m=1$ 、 $n=2$ 、 $5 \leq x \leq 13.5$ 、 $y \approx 1000$  である。)

一方、電極の支持体になるカーボンペーパーを撥水処理した。外寸  $8 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ 、厚み  $360 \mu\text{m}$  のカーボン不織布 (東レ (株) 製、TGP-H-120) をフッ素樹脂の水性ディスパーション (ダイキン工業 (株) 製、ネオフロンND1) に浸漬した後、乾燥し、 $400^\circ\text{C}$  で30分間加熱して撥水性を与えた。このカーボン不織布の一方の面に、触媒ペーストをクリーン印刷法を用いて塗布することにより触媒層を形成した。触媒層の一部は、カーボン不織布の中に埋まり込んでいる。このようにして触媒層とカーボン不織布からなる電極を作製した。この電極中に含まれる白金量およびパーフルオロカーボンスルホン酸の量は、ともに  $0.3 \text{ mg/cm}^2$  となるよう調整した。

次に、外寸が  $10 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$  の水素イオン伝導性高分子電解質膜の裏表両面に、一对の電極を触媒層が電解質膜に接するようにホットプレスにより接合した。これを電解質膜-電極接合体 (MEA) とする。ここでは、水素イオン伝導性高分子電解質として、式 (3) (ただし、式中  $m=2$ 、 $n=2$ 、 $5 \leq x \leq 13.5$ 、 $y \approx 1000$  である。) で表

されるパーフルオロカーボンスルホン酸を  $30\ \mu\text{m}$  の厚みに薄膜化したものを用いた。

次に、耐酸性を有する導電性気密弾性体からなる導電性セパレータ板について説明する。

式(1)中のイソブチレンオリゴマーの繰返し数  $m$  を  $56 \sim 72$ 、平均  $64$  とし、官能基  $X$  および  $Y$  を共にイソプレンとした液状原材料を準備した。その  $100\ \text{g}$ 、導電材としてのカーボンナノチューブ  $15\ \text{g}$ 、平均粒径  $80\ \mu\text{m}$  の黒鉛粉末  $100\ \text{g}$ 、平均粒径  $1\ \mu\text{m}$  以下の黒鉛粉末  $50\ \text{g}$ 、および繊維状グラファイト(平均直径  $50\ \mu\text{m}$ 、平均長  $0.5\ \text{mm}$ )  $50\ \text{g}$  を混合し、これに粘度調整用としてメチルエチルケトン  $200\ \text{g}$  を加えた。これを十分に混合してセパレータ板用原液を調製した。この原液をステンレス鋼製の金型に流し込み、 $50^\circ\text{C}$  で  $0.2$  気圧の減圧中に  $1$  時間保存することにより、メチルエチルケトンを揮発させた。次に、これに加速電圧  $500\ \text{keV}$ 、照射線量  $50\ \text{Mrad}$  の電子線を照射して、イソブチレンオリゴマーの末端のイソプレンを重合させ、導電性セパレータ板を作製した。重合度は約  $10000$  であった。

原材料のイソブチレンオリゴマーの繰返し数  $m$  を  $56$  よりも小さくすると、重合後のシートは堅くなり、電池組立時の締め付け圧力を大きくしないと、MEAとの接触抵抗を下げるができなかった。また、 $m$  を  $72$  より大きくすると、柔らかすぎて、電池組立時の締め付け圧力で、セパレータ板表面のガス流通溝が押しつぶされてしまった。上記の原材料に対する電子線の照射量を制御して、重合度が与える影響を検討した結果、重合度が  $5000$  より小さいと、得られるシートが柔らかすぎ、上記と同じくガス流通溝が押しつぶされてしまった。

また、末端官能基をイソプレン以外のアリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、イソシアネート基、またはエポキシ基として、それぞ

れに適した重合反応により硬化したのも同様に使用できることが確認された。なお、アクリロイル基、またはメタクリロイル基を末端官能基としたときは、上記と同様の電子線照射により、またイソシアネート基としたときは、水分によるウレタン結合化、エポキシ基としたときは、エチルジアミンなどの公知のアミン系硬化剤を用いた加熱により、それぞれ硬化させる。これらの場合においても、官能基をアリル基としたときと同様に、式（１）で示した構成中の原料段階でのイソブチレンオリゴマーの繰り返し数 $m$ を $56 \sim 72$ とし、最終的な重合度を $8000$ 以上としたときに、セパレータ板として適したものであった。

以上のようにして図２～図４に示す導電性セパレータ板２０および冷却部を構成する導電性セパレータ板４１を作製した。同セパレータ板の作製に際しては、セパレータ板にガス流路溝およびマニホールド穴等が形成できるように、ステンレス鋼製の金型に加工が施されており、金型から取り出した後に切削やプレス打ち抜きなどの後加工を施す必要はなかった。

導電性セパレータ板の大きさは $10\text{ cm} \times 20\text{ cm}$ 、厚さは $2\text{ mm}$ である。セパレータ板２０の溝２９および３３は、幅 $2\text{ mm}$ 、深さ $0.7\text{ mm}$ であり、各溝間のリブ２８および３２は幅 $1\text{ mm}$ である。セパレータ板４１の溝４６の深さは $0.7\text{ mm}$ である。また、セパレータ板の外周縁部と、マニホールド穴周縁部（ガス流路溝と連絡する部分を除く）を、電極接触面、すなわちリブ２８および３２の頂面より $0.3\text{ mm}$ 高くなるようにし、その部分で直接高分子電解質膜を挟み込んでガスをシールする方式を採用した。従って、本実施例の電池では、MEA側の電極周縁部にスケットを配置しなかった。

以上のMEAとセパレータ板を用い、 $50$ セル積層した電池スタックを組み立てた。電池スタックの両端部には、ステンレス鋼製の集電板、

絶縁板、および端板を重ね、締結ロッドで固定した。締結圧はセパレータ板の面積当たり  $3 \text{ kg f} / \text{cm}^2$  とした。従来のカーボン製セパレータ板を用いた燃料電池では  $20 \text{ kg f} / \text{cm}^2$  程度の高い締結圧力が必要であったものと較べて、本発明によると小さい圧力で所定の特性を得ることができた。しかし、この圧力より小さすぎるとガスがリークし、接触抵抗も大きくなり電池性能が低下した。また、あまり強く絞めすぎるとセパレータ板の突部がつぶれて、ガスや冷却水の流通が損なわれるため、やはり電池性能は低下した。即ち、導電性セパレータ板の弾力性により、締結圧を調整することが重要であった。

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、 $80^\circ\text{C}$  に保持し、アノードに  $80^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソードに  $70^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した空気をそれぞれ供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 $50 \text{ V}$  の電池開放電圧が得られた。

この電池を燃料利用率  $80\%$ 、酸素利用率  $50\%$ 、電流密度  $0.5 \text{ A} / \text{cm}^2$  の条件で連続発電試験を行ったときの出力特性の時間変化を図6に示した。その結果、本実施例の電池は  $8000$  時間以上にわたって  $1000 \text{ W}$  ( $22 \text{ V} - 45 \text{ A}$ ) の電池出力を維持することが確認された。

また、本実施例の電池は、電極シートを弾力性を有するセパレータ板で挟み込んだ構成であるため、特に振動や衝撃に強いものとなった。従来のカーボン製セパレータ板で構成した電池を  $2 \text{ m}$  の高さから落下させると、ほぼ1回でセパレータ板に亀裂が入ったが、本実施例の電池は約  $100$  回の落下試験の後も、締結部分のロッドが緩む以外、回復不能の破損はなかった。

上記の実施例では、セパレータ板を作るための導電性気密弾性体として、ポリイソブチレンを主骨格とするものを用いたが、本実施例では式(2)で示したエチレンプロピレンランダム共重合体を主鎖骨格とする高分子弾性体を母剤とし、これに導電材を混合したものを用いた。

式(2)で示したエチレンプロピレンランダム共重合体の末端基XとYをそれぞれジエン基とし、共重合比を $1:m=1:1$ 、 $1+m$ を約60とした液状のオリゴマーを調製した。この100gに、カーボンナノチューブ20g、平均粒径 $70\mu\text{m}$ の黒鉛粉末100g、カーボンブラック粉末50g、および繊維状グラファイト(平均直径 $50\mu\text{m}$ 、平均長0.5mm)30gを十分に混合してセパレータ板用原液を作製した。この原液を $160^{\circ}\text{C}$ に保持したステンレス鋼製の金型に射出成形し、これを10分間保持することにより加硫し、導電性セパレータ板を作製した。重合度 $1+m$ は約7000であった。

なお、重合度を20000よりも大きくすると、得られるシートは堅くなりすぎ、電池組立時の締め付け圧力を大きくしないと、MEAとの接触抵抗を下げるができなかった。また、重合度を4000より小さくすると、得られるシートは柔らかすぎて、電池組立時の締め付け圧力で、セパレータ板表面のガス流通溝が押しつぶされてしまった。また、電子線の照射量を制御して、重合度が与える影響を検討した結果、重合度が5000より小さいと、シートが柔らかすぎて、上記と同じくガス流通溝が押しつぶされてしまった。

また、末端官能基を前記のジエン以外のトリエン基、ジオレフィン基、ポリアルケニルシクロアルカン基、ノボルネン誘導体、アクリロイル基、メタクリロイル基、イソシアネート基、またはエポキシ基として、それぞれに適した重合反応により硬化したものも同様に使用できることが確認された。アクリロイル基、またはメタクリロイル基を末端官能基とし

たときは、上記と同様の電子線照射を用い、またイソシアネート基としたときは、水分によるウレタン結合化、エポキシ基のときは、エチルジアミンなどの公知のアミン系硬化剤を用いる加熱により、それぞれ硬化させた。

上記の導電性セパレータ板を用いて、実施例 1 と同様の電池を組み立て、実施例 1 と同一条件でその特性を評価した。その結果を実施例 1 の電池と同様に優れた特性を有することが確認された。また、耐振動性と耐衝撃性も実施例 1 の電池と同じく、優れたものであった。

### 実施例 3

触媒層を形成する電極触媒として、アセチレンブラック粉末に、平均粒径約 30 Å の白金粒子を重量比 75 : 25 の割合で担持したものを用いた。電解質膜は、膜厚 50  $\mu\text{m}$  のものであり、触媒層に含まれる白金量およびパーフルオロカーボンスルホン酸の量がそれぞれ 0.5  $\text{mg}/\text{cm}^2$  および 1.2  $\text{mg}/\text{cm}^2$  とした。前記の条件以外は、実施例 1 と同様にしてMEAを作製した。

次に、以下のようにして、導電性セパレータ板を作製した。バインダーのポリフェニレンサルファイド 20 g、平均粒径が 50 ~ 200  $\mu\text{m}$  の導電性炭素粒子 75 g、および繊維径が 10 nm ~ 30 nm、繊維長が 1 ~ 10  $\mu\text{m}$  のカーボンナノチューブ 5 g を充分に加熱混練することでセパレータ板用ペレットを作製した。このペレットを射出成型機に投入し、所定の金型に射出成形することで、導電性セパレータ板を作製した。射出圧力は 1600  $\text{kgf}/\text{cm}^2$ 、金型温度は 150  $^{\circ}\text{C}$ 、成型時間は 20 秒とした。

以上の方法で図 2 ~ 4 に示す導電性セパレータ板 20 および 41 を作製した。セパレータ板の大きさは 10  $\text{cm} \times 20 \text{ cm}$ 、厚さは 4 mm で

ある。セパレータ板 20 の溝 29 および 33 は、幅 2 mm、深さ 1.5 mm であり、各溝間のリブ 28 および 32 は幅 1 mm である。セパレータ板 41 の溝 46 の深さは 1.5 mm である。

得られたセパレータ板の体積固有抵抗を測定した結果を表 1 に示す。本実施例によるセパレータ板は、カーボンナノチューブを含有しない組成物から作製したセパレータ板に比較して、体積固有抵抗が 100 分の 1 以下に低減され、 $20 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下となった。

表 1

No.		1-1	1-2
組成 (wt%)	バインダー	20	20
	炭素粒子	80	75
	カーボンナノチューブ	0	5
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )		2060	20

以上の MEA およびセパレータ板を用いて、実施例 1 と同様にして 50 セル積層した電池スタックを組み立てた。ただし、電池スタックの締結圧はセパレータ板の面積当たり  $10 \text{ kgf} / \text{cm}^2$  とした。

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、 $85^\circ\text{C}$  に保持し、アノードに  $83^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソードに  $78^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、50 V の電池開放電圧を得た。

この電池を燃料利用率 80%、酸素利用率 40%、電流密度  $0.5 \text{ A} / \text{cm}^2$  の条件で連続発電試験を行った。出力電圧の時間変化を図 7 に示す。本実施例の電池は、8000 時間以上にわたって平均電圧 0.5 V 以上の電池出力を維持することが確認された。



## 実施例 4

バインダーおよびカーボンナノチューブの含有量の異なる 7 種の組成物を用いて、実施例 3 と同様の条件でセパレータ板を射出成形した。セパレータ板の成形性および体積固有抵抗を表 2 に示す。

表 2

No.		2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7	2-8
組 成 (wt%)	バインダー	15	25	35	25	25	25	25	45
	炭素粒子	80	70	60	70	74.5	65	55	50
	カーボン ナノチューブ	5	5	5	0	0.5	10	20	5
	炭素繊維 (60~70 $\mu\text{m}$ )	0	0	0	5	0	0	0	0
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )		—	22	70	—	30	18	18	500
成形性		×	◎	◎	×	◎	○	△	◎

バインダーの量が 20 重量%未満であると、射出時の流れ性が極端に悪化し、射出成形が困難であった。バインダーの量が 40 重量%を越えると、成形性は向上するものの、成形後のセパレータ板の体積固有抵抗が極端に悪化する。カーボンナノチューブの量が 0.5 重量%~10 重量%の範囲では、得られるセパレータ板の体積固有抵抗の低減が顕著であるが、10 重量%を越える量に増加しても体積固有抵抗の低減効果は僅かである。カーボンナノチューブの代わりに他のカーボン繊維（繊維長 60~70  $\mu\text{m}$ ）を混合した場合は、組成物の流れ性が極端に悪化し、射出成形が困難であった。

上記結果をもとに好ましい組成物として、バインダーのポリフェニレンサルファイド 25 重量%、平均粒径が  $50 \sim 200 \mu\text{m}$  の導電性炭素粒子 70 重量%、および繊維径が  $10 \sim 30 \text{ nm}$ 、繊維長が  $1 \sim 10 \mu\text{m}$  のカーボンナノチューブ 5 重量%を充分に加熱混練して成形用ペレットを作製した。このペレットを射出成型機に投入し、所定の金型に射出成形することで、導電性セパレータ板を作製した。射出圧力は  $1600 \text{ kgf/cm}^2$ 、金型温度は  $150^\circ\text{C}$ 、成型時間は 20 秒とした。

以上のようにして作製したセパレータ板を用い、実施例 3 と同様にして積層電池を組み立て、実施例 3 と同じ条件で特性を評価した。その結果、本実施例の電池は、実施例 3 の電池と同様に優れた特性を有することが確認された。また、本実施例のセパレータ板は、靱性、対摩耗性、および対衝撃性において実施例 3 のセパレータ板に比較して優れたものであった。

#### 実施例 5

本実施例では、実施例 4 の成形用ペレットを用いたが、射出成形用の金型表面にはあらかじめフッ素系離形剤と共にカーボンナノチューブを塗布しておいた。実施例 4 と同じ条件で成形して得られたセパレータ板は、その表面に金型より転写されたカーボンナノチューブが結合し、その大部分がセパレータ板の表面に突出していた。このようなセパレータ板を用いると、セパレータ板とガス拡散層との接触点を増加させることが可能となり、接触抵抗を大幅に低減することができる。また、通常の射出成形によって作製したセパレータ板表面を約  $500^\circ\text{C}$  で処理して表面の樹脂層を除去することによっても、同様にカーボンナノチューブがセパレータ板の表面に突出し、接触抵抗を低減する効果が得られる。本実施例によるセパレータ板は、靱性、対摩耗性、および対衝撃性が実施

例 3 のセパレータ板に比較して優れたものとなる。

#### 実施例 6

本実施例では、長径／短径の異なる各種導電性炭素粒子、および金属フィラーを含む組成物からなる成形用ペレットを作製し、これを射出成形してセパレータ板を作製した。射出圧力は  $1000 \text{ kgf/cm}^2$ 、金型温度は  $150^\circ\text{C}$ 、成型時間は 20 秒とした。成形後のセパレータ板は、3%塩酸水溶液中に 2 時間浸漬した後、水洗、乾燥して、表面に露出している銀粉末を除去した。セパレータ板の断面を観察したところ、セパレータ板の中で銀粉末は炭素粒子と炭素粒子の間にあり、銀粉末同士が連続的に連なっていることはなかった。そして、表面に露出した銀粉末のみが除去されていることが確認された。

以上のようにして作製されたセパレータ板の体積固有抵抗、および成形性を表 3 に示す。金属フィラーを添加すると、金属フィラーを含まないもののものに比較して、バインダーの量を増やしても同等の体積固有抵抗を有し、しかも成形性が改善されている。このことから、金属フィラーの添加効果は明らかである。導電性炭素粒子または銀粉末の短径が  $200 \mu\text{m}$  を越えるフィラーでは、成形後のセパレータ板の最も薄い部分に材料の充填不良が生じる。そのため成形性、および得られるセパレータ板のガス透過性に問題が生じる。セパレータ板の最も薄い部分は、例えば、図 2 および図 3 に示すセパレータ板では、一方の面にガス流路 29 を有し、他方の面にガス流路 33 を有する部分である。実施例 1 のセパレータ板においては、最も薄い部分は、厚み  $0.6 \text{ mm}$  であり、実施例 3 のものは  $1.0 \text{ mm}$  である。このことから、フィラーの直径は、セパレータ板の最も薄い部分の  $1/3$  以下、約  $200 \mu\text{m}$  以下に設定することが望ましいことがわかった。

表 3

No.		3-1	3-2	3-3	3-4	3-5	3-6	3-7	3-8	3-9	3-10
組 成 (wt%)	バインダー	30	30	30	30	30	40	40	40	40	40
	炭素粒子	70									
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )		70				50	50	50	50	50
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )			70							
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )				70						
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )					70					
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )						10				
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )							10			
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )								10		
	炭素粒子 長径/短径 ( $\mu\text{m}$ )									10	
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )		100	30	25	25	25	50	30	30	30	30
成形性		○	○	○	○	×	◎	◎	◎	◎	×

### 実施例 7

本実施例では、粒度分布の異なる各種導電性炭素粒子、および導電性の炭素微粒子を含む組成物からなる成形用ペレットを作製し、これを実施例 6 と同じ条件で射出成形してセパレータ板を作製した。成形性および得られたセパレータ板の体積固有抵抗を表 4 に示す。

導電性炭素粒子の粒度分布のピークが平均直径  $200\ \mu\text{m}$  を越えると、セパレータ板の最も薄い部分において成形不良が生じ、これに伴いガス透過の問題が生じる。粒度分布のピークが平均直径  $50\ \mu\text{m}$  未満の場合、体積固有抵抗が悪くなる。しかし、粒度分布のピークが平均直径  $50\sim200\ \mu\text{m}$  の炭素粒子に、粒度分布のピークが平均直径  $30\sim100\ \text{nm}$  の炭素微粒子を混合すると、体積固有抵抗値が大幅に下がることがわかった。ここに用いた微粒子はライオン（株）製のケッチェンブラックである。

上記の結果から、好ましい成形用ペレットの組成例は、バインダーのポリフェニレンサルファイド 40 重量%、平均直径が  $50\sim200\ \mu\text{m}$  の導電性炭素粒子 50 重量%、長径が  $100\sim250\ \mu\text{m}$ 、短径が  $50\ \mu\text{m}$  以下の銀粉末 6 重量%、およびケッチェンブラック（ライオン（株）製） 4 重量%である。

### 実施例 8

本実施例では、好ましい粒度分布を有する導電性炭素粒子を含む組成物からなる成形用ペレットを作製し、実施例 6 と同じ条件でセパレータ板を成形した。成形性および得られたセパレータ板の体積固有抵抗を表 5 に示す。

バインダー量が 20 重量%未満であると、射出時の流れ性が極端に悪く、射出成形が困難であった。バインダー量を 45 重量%以上とすると、

表 4

No.		4-1	4-2	4-3	4-4	4-5	4-6
組成 (wt%)	バインダー	40	40	40	40	40	40
	< 50 $\mu\text{m}$	60			56		
	炭素粒子粒度分布 50~200 $\mu\text{m}$		60			56	
	ピーク平均直径 200 $\mu\text{m}$ < 30~100 nm			60			56
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )		100	40	40	15	15	15
成形性		◎	◎	×	◎	◎	×

表 5

No.		5-1	5-2	5-3	5-4	5-5	5-6	5-7	5-8	5-9	5-10
組成 (wt%)	バインダー	15	25	40	45	35	35	35	35	35	35
	炭素粒子粒度分布 50~200 $\mu\text{m}$	75	65	50	45	64.5	50	45	64.5	55	50
	ピーク平均直径 30~100 nm	0	0	0	0	0	0	0	0.5	10	15
	銀粉末	10	10	10	10	0.5	15	30	0	0	0
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )		15	25	30	500	35	27	35	20	15	15
成形性		×	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎

成形性は向上するものの、得られるセパレータ板の体積固有抵抗が極端に悪くなる。また、金属フィラーを0.5～15重量%混合した場合は、体積固有抵抗の低減が顕著であるが、15重量%を越える量に増やしてもその効果は変わらない。金属イオンの流出の影響を少なくするため、銀粉末の上限は15重量%とするのがよい。平均直径30～100nmの導電性の炭素微粒子を0.5～10重量%混合した場合は、体積固有抵抗の低減が顕著であるが、10重量%を超える量に増やしてもその効果は変わらない。炭素微粒子は、嵩密度が小さく、均一に分散混合させることが難しい。そのため、上限は10重量%とするのがよい。

上記の結果から、好ましい成形用ペレットの組成例は、バインダーのポリフェニレンサルファイド40重量%、平均粒径が50～200 $\mu$ mの導電性炭素粒子50重量%、平均直径が30～100nmの導電性炭素微粒子4重量%、および金属フィラーの銀粉末6重量%である。

成形後のセパレータ板は、3%塩酸水溶液中に2時間浸漬した後、水洗、乾燥して、表面に露出している銀粉末を除去する。

実施例7および本実施例の好ましい組成例のペレットから作製したセパレータ板を用いて組み立てた、実施例3と同様の燃料電池の特性は、同条件下で実施例3の燃料電池とほぼ同様の特性を示した。

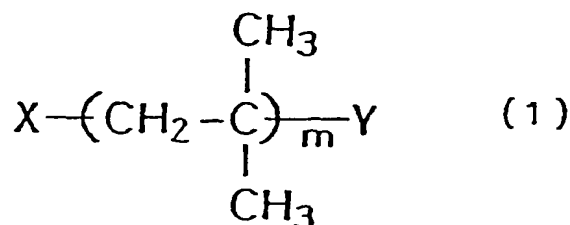
#### 産業上の利用の可能性

本発明によれば、従来のカーボン板の切削工法に替わり、熱可塑性樹脂からなるバインダーを含む組成物の射出成形により作製することができ、大幅なコスト低減を図ることができる。また、体積固有抵抗の増加を最小限に抑えることが可能となる。さらに靱性、対摩耗性および対衝撃性を有し、燃料電池の組み立てにおける歩留まり向上に寄与する。

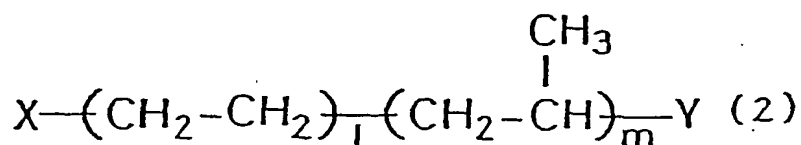
## 請 求 の 範 囲

1. 水素イオン伝導性高分子電解質膜、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む一対の電極、および前記電極の一方に燃料ガスを供給排出し、他方に酸化剤ガスを供給排出する手段を含む一対の導電性セパレータ板を具備し、前記導電性セパレータ板が、バインダー、平均粒径が $50\mu$ 以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの $1/3$ 以下の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる高分子電解質型燃料電池。
2. 前記微細径炭素繊維が、径 $10\sim 30\text{ nm}$ 、長さ $1\sim 10\mu\text{ m}$ の炭素繊維である請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
3. 前記炭素微粒子が、平均直径 $30\sim 100\text{ nm}$ に粒度分布のピークを有する請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
4. 前記組成物が、さらに金属フィラーを含む請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
5. 前記金属フィラーが、長径と短径の比が2以上で、かつ短径が導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの $1/3$ 以下である請求の範囲第4項記載の高分子電解質型燃料電池。
6. 前記バインダーが、耐酸性の樹脂である請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
7. 前記バインダーが、耐酸性を有する気密弾性体である請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
8. 前記気密弾性体が、式(1)で表されるポリイソブチレンまたは式(2)で表されるエチレンプロピレンランダム共重合体を主鎖骨格とする高分子弾性体からなる請求の範囲第7項記載の高分子電解質型燃料電池。





(式中 X および Y は重合性官能基、m はイソブチレンオリゴマーの繰り返し単位数を表す 1 以上の整数である。)



(式中 X および Y は重合性官能基、1 および m は 1 以上の整数である。)

9. 前記組成物が、20～45重量%のバインダー、50～74重量%の導電性炭素粒子、および0.5～10重量%の炭素微粒子からなる請求の範囲第2または3項記載の高分子電解質型燃料電池。

10. さらに0.5～15重量%の金属フィラーを含む請求の範囲第9項記載の高分子電解質型燃料電池。

11. 前記微細径炭素繊維が、セパレータ板の表面に部分的に突出している請求の範囲第2項記載の高分子電解質型燃料電池。

12. 前記セパレータ板の表面に露出する金属フィラーが除かれている請求の範囲第4項記載の高分子電解質型燃料電池。

13. バインダー、平均粒径が50～200 μmの導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物からなる成形用ペレットを調製する工程、および前記ペレットを射出成形する工程を有する高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

14. 前記射出成形工程が、100℃における熱伝導率が26 W/m/K以下で、表面硬度HRCが35以上の材料からなる金型を用いて実施される請求の範囲第13項記載の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

15. 前記射出成形工程が、100℃における熱伝導率が26 W/m/K以下で、表面硬度HRCが35以上の材料からなる内面被覆層を有する金型を用いて実施される請求の範囲第13項記載の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

16. 前記金型が、内面に微細径炭素繊維を付着している請求の範囲第14または15項記載の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

17. 前記組成物が微細径炭素繊維を含み、成形されたセパレータ板を熱処理して表面のバインダーを除去することにより、前記微細径炭素繊維の一部をセパレータ板表面に露出させる工程をさらに含む請求の範囲第13項記載の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

18. 前記組成物が金属フィラーを含み、成形されたセパレータ板をその表面に露出する金属フィラーを除去する工程をさらに含む請求の範囲第13項記載の高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板の製造方法。

FIG. 1

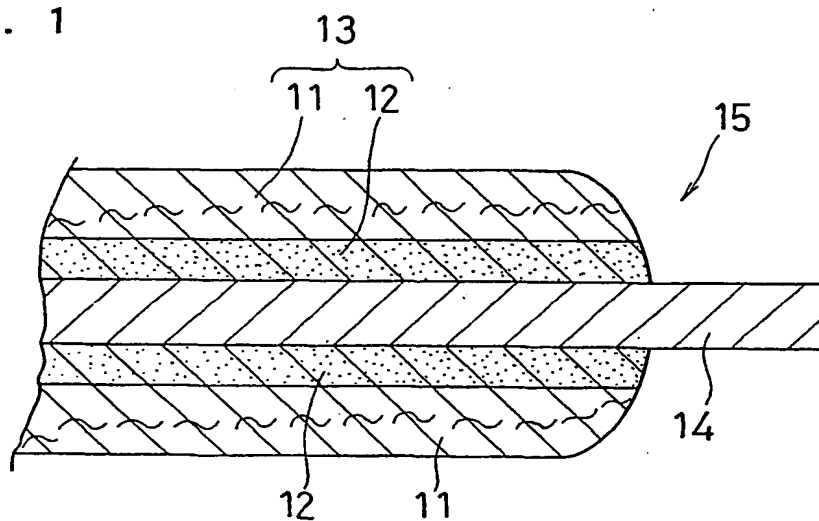


FIG. 2

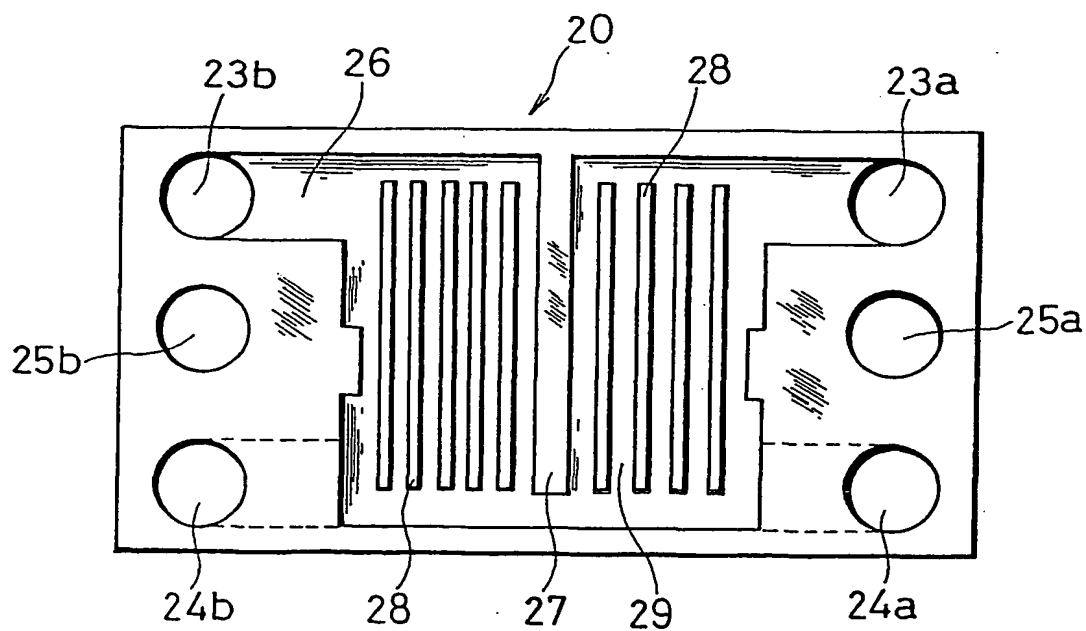


FIG. 3

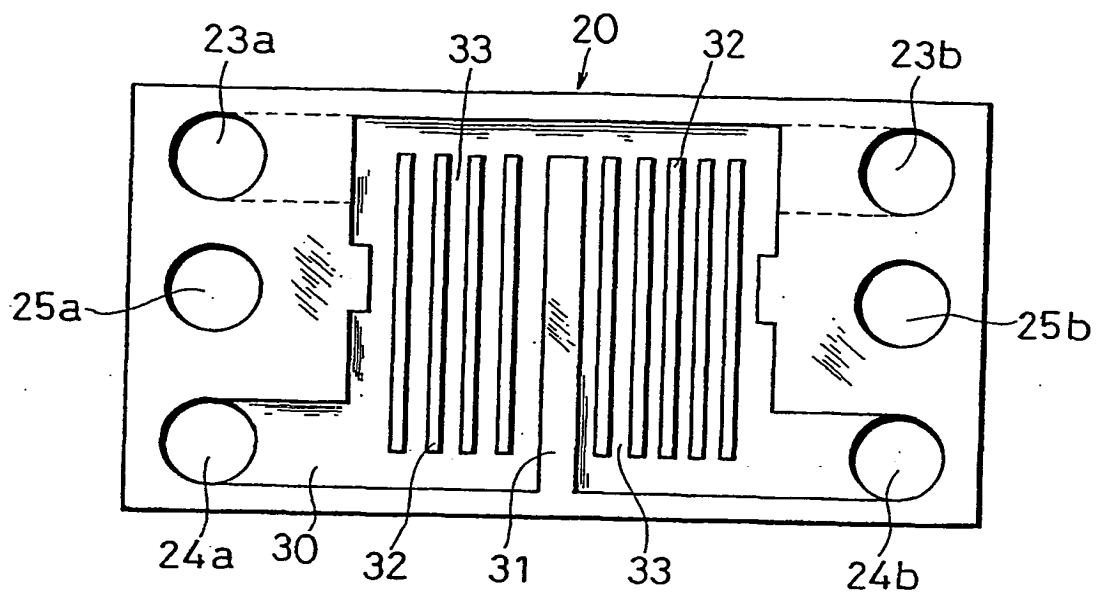


FIG. 4

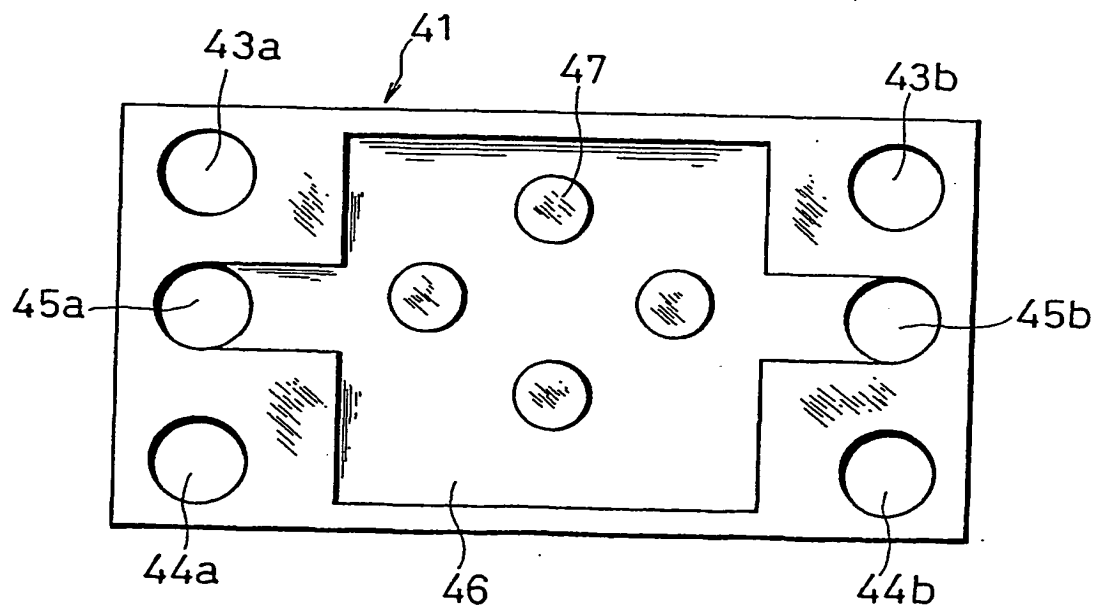


FIG. 5

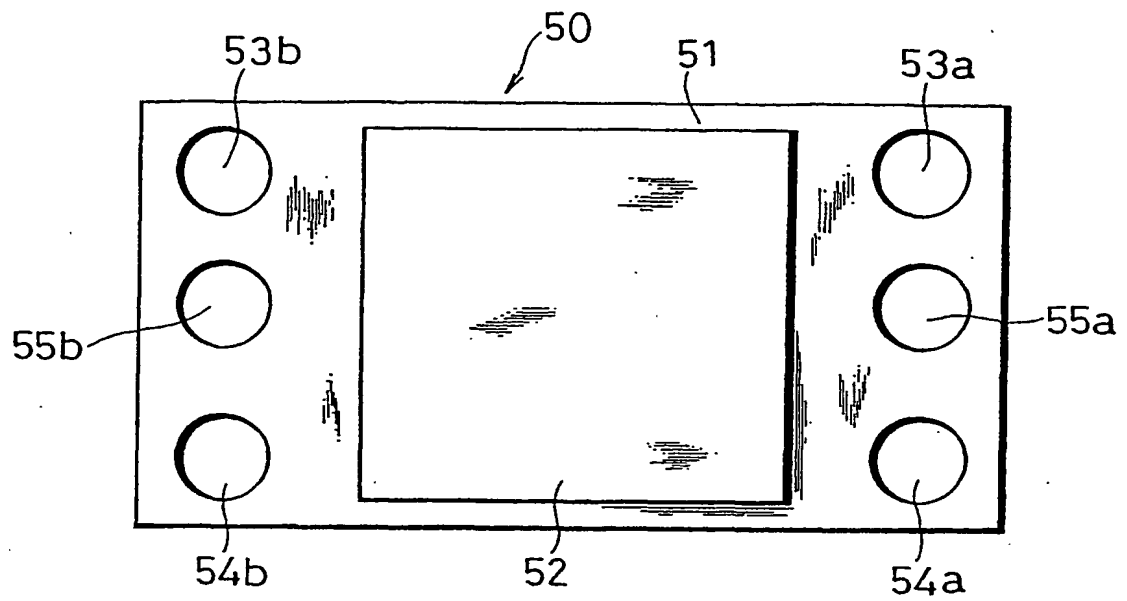


FIG. 6

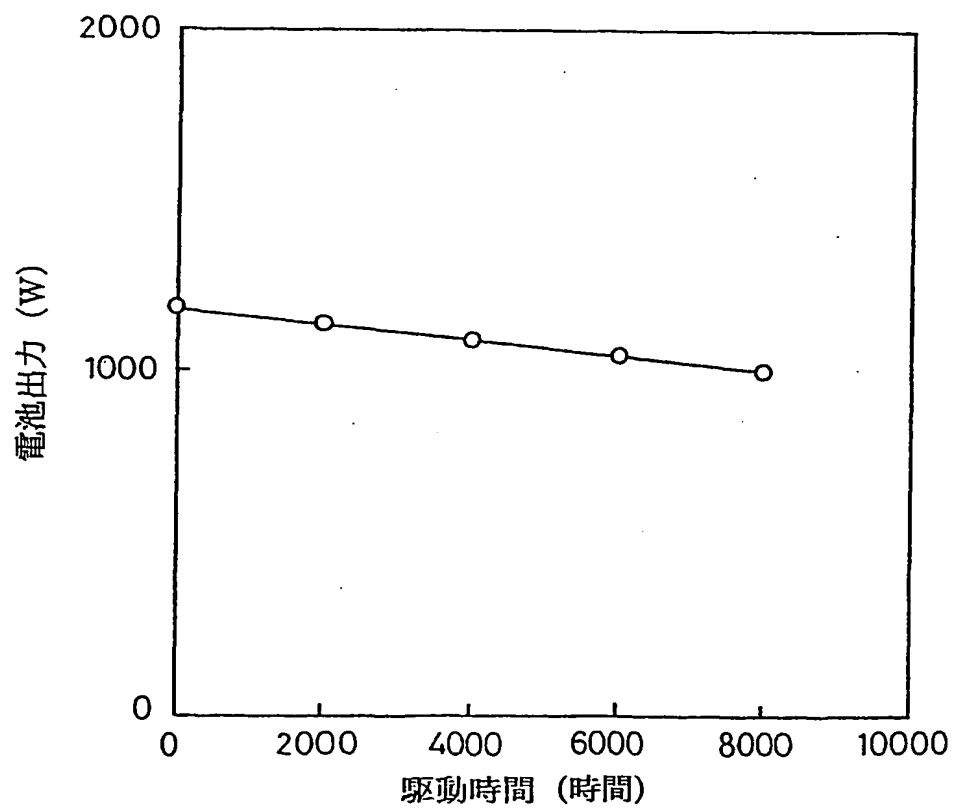
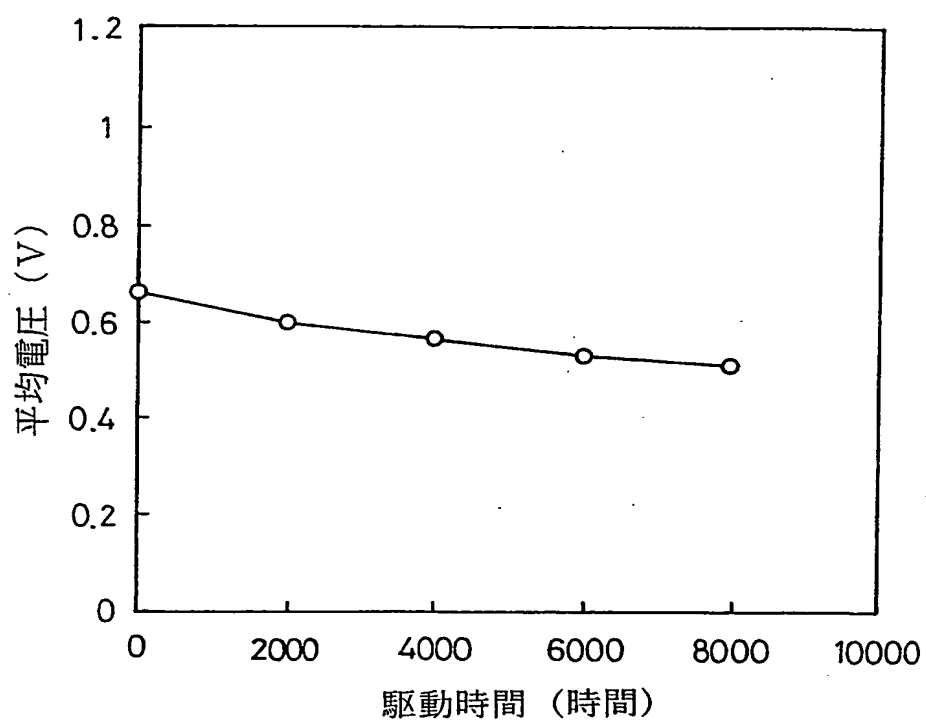


FIG. 7



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/01275

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/02, 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/02, 8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2002  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	EP 1011164 A2 (Nisshinbo Industries, Inc.), 21 June, 2000 (21.06.00), Claims; page 3, line 14 to page 4, line 47 & JP 2000-182630 A Claims; page 3, left column, line 23 to page 4, right column, line 28	1, 3, 6, 9, 11 4-5, 7-8, 10, 13-15, 17 2, 12, 16, 18
X Y A	JP 2000-82476 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 21 March, 2000 (21.03.00), Claims; page 3, left column, line 4 to page 4, right column, line 23 (Family: none)	1, 3, 6, 9, 11 4-5, 7-8, 10, 13-15, 17 2, 12, 16, 18

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
14 May, 2002 (14.05.02)

Date of mailing of the international search report  
28 May, 2002 (28.05.02)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/01275

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2000-40517 A (Tokai Carbon Co., Ltd.), 08 February, 2000 (08.02.00), Claims; page 3, right column, line 7 to page 4, right column, line 48 (Family: none)	1-3,6,9,11 4-5,7-8,10, 13-15,17 12,16,18
Y	JP 10-334927 A (Owada Carbon Kogyo Kabushiki Kaisha), 18 December, 1998 (18.12.98), Claims; page 3, left column, lines 27 to 40 (Family: none)	4-5,10
Y	EP 1009052 A1 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 14 June, 2000 (14.06.00), Claims & JP 11-345620 A	7-8
Y	JP 2000-331690 A (Tokai Carbon Co., Ltd.), 30 November, 2000 (30.11.00), Claims (Family: none)	13-15,17
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 136711/1989 (Laid-open No. 74913/1991) (Canon Inc.), 26 July, 1991 (26.07.91), Claims (Family: none)	14-15
Y	EP 933825 A2 (Toyota Jidosha Kabushiki Kaisha), 04 August, 1999 (04.08.99), Claims; column 3, lines 9 to 30 & JP 11-204120 A Claims; page 3, right column, line 41 to page 4, left column, line 12	17
P,X	JP 2001-126744 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 11 May, 2001 (11.05.01), Full text (Family: none)	1-3,6,9,11
P,X	JP 2001-236966 A (Kawasaki Steel Corp.), 31 August, 2001 (31.08.01), Full text (Family: none)	1-3,6,9,11
E,X	JP 2002-83608 A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 22 March, 2002 (22.03.02), Full text (Family: none)	1-2,6,9,11



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/01275

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.: electroconductive separator  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

(See extra sheet)

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP02/01275Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

Where a group of inventions is claimed, the requirement of unity of invention shall be fulfilled only when there is a special technical feature which links the group of inventions so as to form a single general inventive concept. Inventions according to claims 1 to 18 are found to be linked in a matter that an electroconductive separator plate of a polymer electrolyte type fuel cell comprises a plate formed from a composition containing a binder, electroconductive carbon particles having an average particle diameter which is 50  $\mu\text{m}$  or more and not more than 1/3 of the thickness of the thinnest part of the electroconductive separator plate, and at least one type of electroconductive fine carbon particles ("fine carbon particles" described in claim 1 is qualitative and unclear as to what carbon particles are specified) and electroconductive carbon fibers having a fine diameter ("fine diameter" described in claim 1 is qualitative and unclear as to what carbon fibers are specified). However, the matter is not a special technical feature, because it has been disclosed in prior art references, for example,

Document 1: EP 1011164 A2 (Nisshinbo Industries, Inc.) 2000. 06. 21, Claims, page 3, line 14 to page 4, line 47; and JP 2000-182630 A, Claims, page 3, left column, line 23 to page 4, right column, line 28;

Document 2: JP 2000-82476 A (Hitachi Chemical Co., Ltd) 2000. 03. 21, Claims, page 3, left column, line 4 to page 4, Right column, line 23 (no patent family); and

Document 3: JP 2000-40517 A (Tokai Carbon Co., Ltd) 2000. 02. 08, Claims, page 3, right column, line 7 to page 4, Right column, line 48 (no patent family).

Accordingly, there is no special technical feature among a group of inventions according to claims 1 to 18 which links them so as to form a single general inventive concept. Therefore, it is clear that a group of inventions according to claims 1 to 18 does not comply with the requirement of unity of invention.

The number of groups of inventions described in the scope of claims in this international application which are so linked as to form general inventive groups, that is, the number of inventions is considered in the following.

Claim 1 and claims 2, 3, 4, 6 and 7 defined by referring to claim 1 are linked in a matter that an electroconductive separator plate of a polymer electrolyte type fuel cell comprises a plate formed from a composition containing a binder, electroconductive carbon particles having an average particle diameter which is 50  $\mu\text{m}$  or more and not more than 1/3 of the thickness of the thinnest part of the electroconductive separator plate, and at least one type of electroconductive fine carbon particles and electroconductive carbon fibers having a fine diameter. However, the matter is not a special technical feature, because it has been disclosed in the above prior art Documents 1 to 3 etc. Therefore, each of the above claims describes a separate invention.

Claims 13 to 18 have been found to be so linked as to form a single general inventive concept, since the claims have a special technical feature that a method for manufacturing an electroconductive separator plate which comprises preparing pellets for molding comprising a composition containing a binder, electroconductive carbon particles having an average particle diameter of 50 to 200  $\mu\text{m}$ , and at least one type of electroconductive fine carbon particles and electroconductive

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/01275

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

carbon fibers having a fine diameter, and subjecting the pellets to injection molding.

Accordingly, the scope of claims in this international application describe seven inventions classified into claim 1, claims 2 and 9 to 11, claim 3, claims 4,5 and 12, claim 6, claims 7 to 8, and claims 13 to 18

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, 8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2002年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2002年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	EP 1011164 A2 (Nisshinbo Industries, Inc.) 2000. 06. 21, 特許請求の範囲, 第3頁14行-第4頁4 7行 & JP 2000-182630 A, 特許請求の範囲, 第3 頁左欄23行-第4頁右欄28行	1, 3, 6, 9, 11 4-5, 7-8, 10, 13-15, 17 2, 12, 16, 18
X Y A	JP 2000-82476 A (日立化成工業株式会社) 2000. 03. 21, 特許請求の範囲, 第3頁左欄4行-第4頁 右欄23行 (ファミリーなし)	1, 3, 6, 9, 11 4-5, 7-8, 10, 13-15, 17 2, 12, 16, 18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14. 05. 02

国際調査報告の発送日

28.05.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
 原 賢一



4X 9062

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	J P 2000-40517 A (東海カーボン株式会社) 2000. 02. 08, 特許請求の範囲, 第3頁右欄7行-第4頁 右欄48行 (ファミリーなし)	1-3, 6, 9, 11 4-5, 7-8, 10, 13-15, 17 12, 16, 18
Y	J P 10-334927 A (大和田カーボン工業株式会社) 1998. 12. 18, 特許請求の範囲, 第3頁左欄27-40行 (ファミリーなし)	4-5, 10
Y	E P 1009052 A1 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.) 2000. 06. 14, 特許請求の範囲 & J P 11-345620 A	7-8
Y	J P 2000-331690 A (東海カーボン株式会社) 2000. 11. 30, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	13-15, 17
Y	日本国実用新案登録出願1-136711号 (日本国実用新案登録 出願公開3-74913号) の願書に添付した明細書及び図面の内 容を撮影したマイクロフィルム (キャノン株式会社) 1991. 07. 26, 実用新案登録請求の範囲 (ファミリーな し)	14-15
Y	E P 933825 A2 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) 1999. 08. 04, 特許請求の範囲, 第3欄9-30行 & J P 11-204120 A, 特許請求の範囲, 第3頁右欄4 1行-第4頁左欄12行	17
P, X	J P 2001-126744 A (大阪瓦斯株式会社) 2001. 05. 11, 全文 (ファミリーなし)	1-3, 6, 9, 11
P, X	J P 2001-236966 A (川崎製鉄株式会社) 2001. 08. 31, 全文 (ファミリーなし)	1-3, 6, 9, 11
E, X	J P 2002-83608 A (新日鐵化学株式会社) 2002. 03. 22, 全文 (ファミリーなし)	1-2, 6, 9, 11

## 第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

特別ページ参照

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1-18に記載されている発明は、高分子電解質型燃料電池の導電性セパレータ板を、バインダー、平均粒径が $50\mu$ 以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの $1/3$ 以下の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子（請求の範囲1に記載の「微粒子」は定性的な記載でどのような炭素粒子を規定しているのか明確でない）及び微細径炭素繊維（請求の範囲1に記載の「微細径」は定性的な記載でどのような炭素繊維を規定しているのか明確でない）の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる点で一応関連しているものの、この事項は、先行技術文献、例えば、

文献1：EP 1011164 A2 (Nisshinbo Industries, Inc.) 2000. 06.

21, 特許請求の範囲, 第3頁14行-第4頁47行&

JP 2000-182630 A, 特許請求の範囲, 第3頁左欄23行-第4頁右欄28行

文献2：JP 2000-82476 A (日立化成工業株式会社) 2000. 03.

21, 特許請求の範囲, 第3頁左欄4行-第4頁右欄23行 (ファミリーなし)

文献3：JP 2000-40517 A (東海カーボン株式会社) 2000. 02.

08, 特許請求の範囲, 第3頁右欄7行-第4頁右欄48行 (ファミリーなし)

等に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲1-18に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存在しないこととなる。そのため、請求の範囲1-18に記載されている一群の発明が発明の単一性を満たしていないことは明らかである。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討する。

請求の範囲1と請求の範囲1を引用する2, 3, 4, 6, 7は、高分子電解質型燃料電池の導電性セパレータ板を、バインダー、平均粒径が $50\mu$ 以上で導電性セパレータ板の最も薄い部分の厚みの $1/3$ 以下の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子及び微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物の成形板からなる点で一応関連しているものの、この事項は先行技術文献1-3等に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ず、互いに別発明であると認める。

請求の範囲13-18は高分子電解質型燃料電池用導電性セパレータ板を製造するにおいて、バインダー、平均粒径が $50\sim 200\mu m$ の導電性炭素粒子、並びに導電性の炭素微粒子および微細径炭素繊維の少なくとも一方を含む組成物からなる成形用ペレットを調製し、ペレットを射出成形することを特別な技術的特徴とすることによって、単一の一般的発明概念を形成するように連関していると認められる。

したがって、この国際出願の請求の範囲には、請求の範囲1と、請求の範囲2, 9-11と、請求の範囲3と、請求の範囲4, 5, 12と、請求の範囲6と、請求の範囲7-8と、請求の範囲13-18とに区分される7個の発明が記載されているものと認める。

1000





P.B.5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ +31 70 340 2040  
TX 31651 epo nl  
FAX +31 70 340 3016

**Europäisches  
Patentamt**

Zweigstelle  
in Den Haag  
Recherchen-  
abteilung

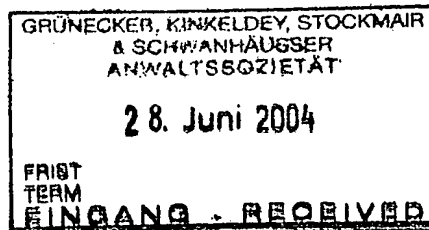
**European  
Patent Office**

Branch at  
The Hague  
Search  
division

**Office européen  
des brevets**

Département à  
La Haye  
Division de la  
recherche

Grünecker, Kinkeldey,  
Stockmair & Schwanhäusser  
Anwaltssozietät  
Maximilianstrasse 58  
80538 München  
ALLEMAGNE



Datum/Date

28.06.04

Zeichen/Ref./Réf.

EP30446KG900kap

Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n°.

04006396.8-1220-

Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire

NICHIAS CORPORATION

## COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

The following specifications given by the applicant have been approved by the Search Division:

☒ abstract

☒ title

☐ The abstract was modified by the Search Division and the definitive text is attached to this communication.

The following figure will be published together with the abstract:

1

## REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



1000





DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
① X	WO 02/065567 A (HASE NOBUHIRO ; NIIKURA JUNJI (JP); OHARA HIDEO (JP); HATOH KAZUHITO ( ) 22 August 2002 (2002-08-22) * abstract; claims 1-18 * * page 4, paragraph 30 * * page 6, paragraph 50 * * page 10, paragraph 75; example 2 *	1-9	H01M8/02 C08K3/04 C08K7/22 C04B35/00
② X	WO 03/014209 A (KOBAYASHI TOMOAKI ; IINO TADASHI (JP); SHOWA DENKO KK (JP); NOGUCHI MA) 20 February 2003 (2003-02-20) * abstract; claims 1-20 *	1-3,8,9	
③ X	EP 1 061 597 A (KAWASAKI STEEL CO) 20 December 2000 (2000-12-20) * abstract; claims 1-19 * * page 5, lines 9-36 *	1,2,4,8,9	
④ P,X	WO 03/036661 A (CTS CORP) 1 May 2003 (2003-05-01) * abstract; claims 1-26 * * page 8, line 20 - page 10, line 19 * * page 15; example 11 *	1-7,9	
The present search report has been drawn up for all claims			TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7)  H01M C08K C04B
Place of search The Hague		Date of completion of the search 18 June 2004	Examiner Bergmans, K
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS			
X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document			

1000

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 04 00 6396

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

18-06-2004

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 02065567	A	22-08-2002	CN	1457523 T	19-11-2003
			EP	1351329 A1	08-10-2003
			WO	02065567 A1	22-08-2002
<hr/>					
WO 03014209	A	20-02-2003	CN	1464892 T	31-12-2003
			EP	1414894 A1	06-05-2004
			WO	03014209 A1	20-02-2003
			JP	2003176327 A	24-06-2003
			US	2003191228 A1	09-10-2003
<hr/>					
EP 1061597	A	20-12-2000	CA	2311196 A1	14-12-2000
			EP	1061597 A2	20-12-2000
			JP	2001236966 A	31-08-2001
			US	6544680 B1	08-04-2003
<hr/>					
WO 03036661	A	01-05-2003	US	2003100653 A1	29-05-2003
			WO	03036661 A2	01-05-2003
			US	2003146418 A1	07-08-2003
<hr/>					

1000

4

1000